



IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Miyuki TANAKA, et al.

GAU: 1714

SERIAL NO: 10/722,406

EXAMINER:

FILED: November 28, 2003

FOR: FLAME RETARDANT SILICONE COMPOSITIONS

REQUEST FOR PRIORITY

COMMISSIONER FOR PATENTS  
ALEXANDRIA, VIRGINIA 22313

SIR:

- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number , filed , is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.
- ☐ Full benefit of the filing date(s) of U.S. Provisional Application(s) is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e): Application No. Date Filed
- ☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

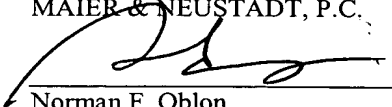
<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NUMBER</u>	<u>MONTH/DAY/YEAR</u>
JAPAN	2002-347807	November 29, 2002

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. filed
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number  
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. filed ; and
- ☐ (B) Application Serial No.(s)  
☐ are submitted herewith  
☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,  
MAIER & NEUSTADT, P.C.

  
Norman F. Oblon

Registration No. 24,618

Customer Number

22850

Tel. (703) 413-3000  
Fax. (703) 413-2220  
(OSMMN 05/03)

Roland E. Martin  
Registration No. 48,082

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日                      2 0 0 2 年 1 1 月 2 9 日  
Date of Application:

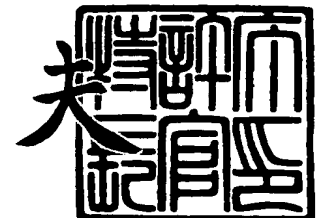
出 願 番 号                      特 願 2 0 0 2 - 3 4 7 8 0 7  
Application Number:  
[ST. 10/C] :                      [ J P 2 0 0 2 - 3 4 7 8 0 7 ]

出      願      人                      信越化学工業株式会社  
Applicant(s):

2 0 0 3 年    8 月 2 2 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 14479

【提出日】 平成14年11月29日

【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿

【国際特許分類】 C08L 83/00

【発明者】

    【住所又は居所】 群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内

    【氏名】 田中 実行

【発明者】

    【住所又は居所】 群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内

    【氏名】 佐藤 一安

【特許出願人】

    【識別番号】 000002060

    【氏名又は名称】 信越化学工業株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100079304

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 小島 隆司

【選任した代理人】

    【識別番号】 100114513

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 重松 沙織

【選任した代理人】

    【識別番号】 100120721

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 小林 克成

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 003207

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 難燃性シリコン組成物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 (A) 下記平均組成式 (1)



(式中、R は低級アルケニル基、 $R^1$  は脂肪族不飽和結合を有さない置換又は非置換の 1 価炭化水素基であり、a は 0. 0 0 0 1 ~ 0. 2、b は 1. 7 ~ 2. 2 の正数であり、a + b は 1. 9 ~ 2. 4 である。)

で表され、1 分子中に低級アルケニル基を少なくとも 1 個有するオルガノポリシロキサン：1 0 0 重量部、

(B) 1 分子中に珪素原子に結合した水素原子を少なくとも 2 個有するオルガノハイドロジェンポリシロキサン：(A) 成分中のアルケニル基 1 個に対して珪素原子に結合した水素原子を 0. 1 ~ 5 個与える量、

(C) 白金又は白金系化合物：(A) 成分に対して白金元素の重量として 0. 1 ~ 1, 0 0 0 p p m を与える量、

(D) インドリン、1, 2, 3 - トリアゾール、1, 2, 4 - トリアゾール、イミダゾール、インダゾール、ベンゾオキサゾール、2 - ヒドロキシベンツオキサゾール、5 - ベンジルオキシインドール、1, 2 - ベンズイソキサゾール、2, 1 - ベンズイソキサゾール及び 1, 3 - ベンゾジオキサゾールから選ばれる 1 種又は 2 種以上の化合物：0. 0 0 0 1 ~ 1 重量部

を含有することを特徴とする難燃性シリコン組成物。

【請求項 2】 (A) 及び (B) 成分中の環状低分子シロキサン成分  $D_3 \sim D_{10}$  の含有量の合計が、1, 0 0 0 p p m 以下である請求項 1 記載の組成物。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、難燃性の硬化物を与え、I C やハイブリッド I C の保護などに好適に用いられるシリコン組成物に関する。

【0 0 0 2】

**【従来の技術】**

従来より、硬化してエラストマーとなる付加硬化型シリコンゴム組成物の難燃化技術は数多く知られている。その最も基本的な技術は、オルガノポリシロキサンへの白金化合物の添加である。更に、難燃性向上のため、ベンゾトリアゾール、ヒドラジン等の添加の効果も認められている。また、煙霧質酸化チタン、酸化セリウム、水酸化セリウム、酸化鉄、炭素粉末等の効果も認められている。しかし、この種のシリコンゴム組成物は、いずれも煙霧質シリカ、石英粉等の補強性無機質充填剤を含んだ系である。

**【0003】**

一方、オルガノポリシロキサンを主成分とする透明な材料としては、従来、光学機器に関連する部材の充填剤、あるいは車載用の電気電子部品に用いられるハイブリッドIC回路の保護材料や民生用のパワーモジュールの保護封止剤としてシリコンゲルを用いることが知られている。これらの分野においても難燃性の要求があり、近年では特許第2864944号公報（特許文献1）に提案されているように、アミン化合物を添加することにより難燃性を発現するものや、特開平8-231858号公報（特許文献2）に提案されているように、リン系化合物を添加することにより難燃性を発現するものなどが見いだされてきている。

**【0004】**

最近では、更にユーザーにおける作業性の向上や、保護すべきICチップ等の特性から、従来より低温で硬化可能であることや、室温で硬化可能であること、更には1液化可能であることが要求されてきている。しかしながら、特許第2864944号公報に提案されているアミン化合物を用いた組成物では、難燃性を維持したまま、室温や低温で組成物を硬化させることは非常に困難であった。

**【0005】****【特許文献1】**

特許第2864944号公報

**【特許文献2】**

特開平8-231858号公報

**【0006】**

## 【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上記事情に鑑みなされたもので、室温硬化や1液化が可能であり、透明性を有し、優れた硬化性と難燃性を発現するゴム状又はゲル状の硬化物を与える難燃性シリコン組成物を提供することを目的とする。

## 【0007】

## 【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記要望に応えるため鋭意検討を行った結果、(A) 下記平均組成式(1)で表される1分子中に低級アルケニル基を少なくとも1個有するオルガノポリシロキサンを100重量部、(B) 1分子中に珪素原子に結合した水素原子を少なくとも2個有するオルガノヒドロジェンポリシロキサンを(A)成分中のアルケニル基1個に対して珪素原子に結合した水素原子を0.1～5個与える量、(C) 白金又は白金系化合物を(A)成分に対して白金元素の重量として0.1～1,000ppm与える量、及び(D) インドリン、1,2,3-トリアゾール、1,2,4-トリアゾール、イミダゾール、インダゾール、ベンゾオキサゾール、2-ヒドロキシベンツオキサゾール、5-ベンジルオキシインドール、1,2-ベンズイソキサゾール、2,1-ベンズイソキサゾール及び1,3-ベンゾジオキサソールから選ばれる1種又は2種以上の化合物を0.0001～1重量部含有する難燃性シリコン組成物が、室温硬化や1液化が可能であるとともに、透明性を有し、優れた硬化性と難燃性を発現するゴム状又はゲル状の硬化物となり得ることを見いだした。

更に、上記(A)及び(B)成分中の環状低分子シロキサン成分D<sub>3</sub>～D<sub>10</sub>(即ち、環状ジメチルシロキサン3～10量体)の含有量の合計を1,000ppm以下とすることにより、更に硬化物の難燃性が向上することを見いだし、本発明をなすに至ったものである。

## 【0008】

従って、本発明は、下記に示す難燃性シリコン組成物を提供する。

〔I〕 (A) 下記平均組成式(1)



(式中、Rは低級アルケニル基、R<sup>1</sup>は脂肪族不飽和結合を有さない置換又は非

置換の 1 価炭化水素基であり、 $a$  は  $0.0001 \sim 0.2$ 、 $b$  は  $1.7 \sim 2.2$  の正数であり、 $a + b$  は  $1.9 \sim 2.4$  である。)

で表され、1 分子中に低級アルケニル基を少なくとも 1 個有するオルガノポリシロキサン：100 重量部、

(B) 1 分子中に珪素原子に結合した水素原子を少なくとも 2 個有するオルガノハイドロジェンポリシロキサン：(A) 成分中のアルケニル基 1 個に対して珪素原子に結合した水素原子を  $0.1 \sim 5$  個与える量、

(C) 白金又は白金系化合物：(A) 成分に対して白金元素の重量として  $0.1 \sim 1,000 \text{ ppm}$  を与える量、

(D) インドリン、1, 2, 3-トリアゾール、1, 2, 4-トリアゾール、イミダゾール、インダゾール、ベンゾオキサゾール、2-ヒドロキシベンツオキサゾール、5-ベンジルオキシインドール、1, 2-ベンズイソキサゾール、2, 1-ベンズイソキサゾール及び 1, 3-ベンズジオキサソールから選ばれる 1 種又は 2 種以上の化合物： $0.0001 \sim 1$  重量部

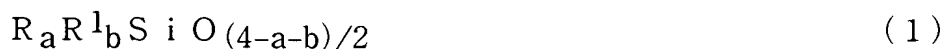
を含有することを特徴とする難燃性シリコーン組成物。

〔II〕 (A) 及び (B) 成分中の環状低分子シロキサン成分  $D_3 \sim D_{10}$  の含有量の合計が、 $1,000 \text{ ppm}$  以下である〔I〕記載の組成物。

#### 【0009】

##### 【発明の実施の形態】

以下、本発明につき更に詳述すると、本発明の (A) 成分は、シリコーン組成物の主剤（ベースポリマー）であり、1 分子中にアルケニル基を少なくとも 1 個有するオルガノポリシロキサンである。この (A) 成分としては、下記一般式 (1)



で示されるものが使用される。

#### 【0010】

ここで、 $R$  はビニル基、アリル基、プロペニル基、イソプロペニル基、ブテニル基、イソブテニル基等の炭素数 2 ～ 6、好ましくは炭素数 2 ～ 4 の低級アルケニル基であり、特にビニル基であることが望ましい。また、 $R^1$  は脂肪族不飽和

結合を含まない置換又は非置換の 1 価の炭化水素基であり、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、オクチル基、デシル基、ドデシル基などのアルキル基、フェニル基、トリル基などのアリール基、ベンジル基、フェニルエチル基などのアラルキル基、クロロメチル基、3, 3, 3-トリフロロプロピル基などの、通常、炭素数 1~10、好ましくは炭素数 1~6 程度のものが挙げられるが、合成の容易さなどの観点で、メチル基又はフェニル基であることが望ましい。

#### 【0011】

また、a は 0.0001~0.2、b は 1.7~2.2 の正数で、上記 (A) 成分中に少なくとも 1 個、好ましくは 2~50 個の R (アルケニル基) を有するように選定されるが、a+b は 1.9~2.4、好ましくは 1.95~2.05 の範囲であり、この (A) 成分のオルガノポリシロキサンは直鎖状であっても、 $\text{RSiO}_{3/2}$  単位、 $\text{R}^1\text{SiO}_{3/2}$  単位や  $\text{SiO}_2$  単位を含む分岐状であってもよいが、通常は、主鎖が基本的にジオルガノシロキサン単位の繰り返しからなり、分子鎖両末端がトリオルガノシロキシ基で封鎖された直鎖状のジオルガノポリシロキサンであることが望ましい。

#### 【0012】

(A) 成分のオルガノポリシロキサンの粘度は、25℃において 50~100,000 mPa·s が好ましく、より好ましくは 100~10,000 mPa·s である。50 mPa·s より粘度が低いと、得られる硬化物がもろくなる場合が生じ、また、100,000 mPa·s を超える場合、流動性が低下し、作業性に劣る場合がある。

#### 【0013】

次に、本発明の (B) 成分は、1 分子中に珪素原子に結合した水素原子を少なくとも 2 個有するオルガノハイドロジェンポリシロキサンで、上記 (A) 成分と反応し、架橋剤として作用するものである。その分子構造には特に制限はなく、従来より知られている、例えば直鎖状、環状、分岐状、三次元網状構造 (樹脂状) 等の各種構造が使用可能であるが、1 分子中に 2 個以上、好ましくは 3 個以上

のケイ素原子に結合した水素原子（SiHで表されるヒドロシリル基）を有する  
 必要があり、通常、3～500個、好ましくは3～200個、より好ましくは3  
 ～100個程度のSiH基を有することが望ましい。このオルガノハイドロジェ  
 ンポリシロキサンとしては、下記平均組成式（2）で示されるものが好適に用い  
 られる。

$$R^2_c H_d Si O_{(4-c-d)/2} \quad (2)$$

#### 【0014】

上記平均組成式（2）中、 $R^2$ は、脂肪族不飽和結合を除く、好ましくは炭素  
 数1～10の、ケイ素原子に結合した非置換又は置換の一価炭化水素基であり、  
 例えばメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチ  
 ル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ネオペンチル基、ヘキシル基、シクロ  
 ヘキシル基、オクチル基、ノニル基、デシル基等のアルキル基、フェニル基、ト  
 リル基、キシリル基、ナフチル基等のアリール基、ベンジル基、フェニルエチル  
 基、フェニルプロピル基等のアラルキル基、3,3,3-トリフルオロプロピル  
 基等が挙げられる。中でも好ましくはアルキル基、アリール基であり、より好ま  
 しくはメチル基、フェニル基であることが難燃性の点から望ましい。また、cは  
 0.7～2.1、dは0.001～1.0で、かつc+dが0.8～3.0を満  
 足する正数であり、好ましくは、cは1.0～2.0、dは0.01～1.0、  
 c+dが1.5～2.5である。

#### 【0015】

1分子中に2個以上、好ましくは3個以上含有されるSiH基は、分子鎖末端  
 、分子鎖途中のいずれに位置していてもよく、またこの両方に位置するものであ  
 ってもよい。また、このオルガノハイドロジェンポリシロキサンの分子構造は直  
 鎖状、環状、分岐状、三次元網状構造のいずれであってもよいが、得られるシリ  
 コーンゴムの物理特性、組成物の取扱作業性の点から、1分子中のケイ素原子の  
 数（又は重合度）は、通常、2～1,000個、好ましくは3～300個、より  
 好ましくは4～150個程度のものが望ましく、25℃における粘度が、通常、  
 0.1～5,000 mPa・s、好ましくは0.5～1,000 mPa・s、よ  
 り好ましくは5～500 mPa・s程度の、室温（25℃）で液状のものが好適

に使用される。

#### 【0016】

上記平均組成式(2)のオルガノハイドロジェンポリシロキサンとして、具体的には、例えば、1, 1, 3, 3-テトラメチルジシロキサン、メチルハイドロジェンシクロポリシロキサン、メチルハイドロジェンシロキサン・ジメチルシロキサン環状共重合体、両末端トリメチルシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンポリシロキサン、両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体、両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体、両末端トリメチルシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンシロキサン・ジフェニルシロキサン共重合体、両末端トリメチルシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンシロキサン・ジフェニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体、両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンシロキサン・ジメチルシロキサン・ジフェニルシロキサン共重合体、 $(\text{CH}_3)_2\text{HSiO}_{1/2}$ 単位と $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{1/2}$ 単位と $\text{SiO}_{4/2}$ 単位とからなる共重合体、 $(\text{CH}_3)_2\text{HSiO}_{1/2}$ 単位と $\text{SiO}_{4/2}$ 単位とからなる共重合体、 $(\text{CH}_3)_2\text{HSiO}_{1/2}$ 単位と $\text{SiO}_{4/2}$ 単位と $(\text{C}_6\text{H}_5)_3\text{SiO}_{1/2}$ 単位とからなる共重合体などが挙げられる。

#### 【0017】

この(B)成分の添加量は、(A)成分中のアルケニル基1個に対し、(B)成分の珪素原子に結合した水素原子(即ち、 $\text{SiH}$ 基)を0.1~5個与える量であり、特に、0.5~3個であることが好ましい。ここで、珪素原子に結合した水素原子( $\text{SiH}$ 基)が0.1個より少ない場合は、架橋密度が低くなりすぎ、硬化物の耐熱性に悪影響を与え、また、5個より多い場合は、脱水素反応による発泡の問題が生じたり、耐熱性に悪影響を与える。

#### 【0018】

ここで、本発明者らは、難燃性に関する要因として、(A)成分及び(B)成分中の無官能低分子シロキサン含有量(特に、環状ジメチルシロキサン3~10量体( $\text{D}_3\sim\text{D}_{10}$ )の含有量)が、大きく影響を与えていることを見いだした。

この (A) 成分は、通常シクロポリシロキサンを水酸化カリウム、テトラアルキルアンモニウムハイドロオキシド、テトラアルキルフォスフォニウムハイドロオキシド等の強塩基触媒もしくはこれらのシリコネート化合物を用いて平衡化、次いで、これらの触媒の中和、失活によって重合体を得ており、この際に生じる低分子シロキサン副生成物は、通常減圧下、加熱ストリップによって除去されている。これらの除去レベルは経済性によって左右されるが、現在、一般市販レベルの材料は、分子中の珪素原子の合計が 3 ~ 10 である低分子シロキサンの合計量が数千から数万 ppm の範囲にある。本発明者らは、組成物中の無官能低分子シロキサン総含有量を 1,000 ppm 以下、好ましくは 500 ppm 以下に低減することにより、大幅な難燃性の向上が認められることを知見したものである。

#### 【0019】

従って、本発明においては、(A) 成分と (B) 成分中の無官能低分子シロキサン D<sub>3</sub> ~ D<sub>10</sub> (環状ジメチルシロキサン 3 ~ 10 量体) の合計含有量が 1,000 ppm 以下、好ましくは 500 ppm 以下になるように調製することが推奨される。

#### 【0020】

この低分子シロキサンの削減方法としては、通常行われている蒸発法では困難であり、臨界抽出法、溶剤による低分子抽出、あるいは薄膜蒸発法によるストリップ等の方法によって行われる。薄膜蒸発法等、減圧下、加熱処理によって得られる低分子シロキサンを除去した後の (A) 成分は、必然的に残存するシラノール量が低減されている。なお、この低分子シロキサンの含有量は FID ガスクロマトグラフィにより測定される。

#### 【0021】

本発明に用いられる (C) 成分の白金又は白金系化合物は、前記 (A) 成分中の珪素原子に結合したアルケニル基と (B) 成分中の珪素原子に結合した水素原子 (SiH 基) との付加反応を促進させるための触媒として使用されるものであり、これは公知のものを使用することができる。具体的には、白金ブラック、塩化白金酸、塩化白金酸のアルコール変性物、塩化白金酸とオレフィンアルデヒド

、ビニルシロキサン又はアセチレンアルコール類等の錯体が例示される。

#### 【0022】

(C) 成分の添加量は触媒量であり、希望する硬化速度により適宜増減すればよいが、通常は (A) 成分に対して白金原子の重量として 0.1～1,000 ppm であり、好ましくは 10～300 ppm の範囲である。

#### 【0023】

本発明においては、(D) 成分として、インドリン、1,2,3-トリアゾール、1,2,4-トリアゾール、イミダゾール、インダゾール、ベンゾオキサゾール、2-ヒドロキシベンゾオキサゾール、5-ベンジルオキシインドール、1,2-ベンズイソキサゾール、2,1-ベンズイソキサゾール及び 1,3-ベンゾジオキサソールから選ばれる化合物を難燃性向上のために配合する。これらの化合物の作用は明確ではないが、実際の燃焼試験による評価において著しい効果が認められたものである。これらの化合物は、1種を単独で用いてもよく、また2種以上を混合して用いてもよい。

#### 【0024】

この (D) 成分の配合量は、(A) 成分 100 重量部に対して 0.0001～1 重量部であり、好ましくは 0.001～0.5 重量部である。(D) 成分の配合量が少なすぎると、難燃性の向上が認められず、また多すぎると、組成物の硬化性が低下したり、硬化物の難燃性が低下する。

#### 【0025】

また、(D) 成分は、組成物中にそのまま添加してもよいが、必要に応じて、低級アルコールなどの極性溶媒に溶解して添加してもよい。

#### 【0026】

本発明の組成物には、上記組成物の反応を抑制させるため、アセチレン系抑制剤、アミン系抑制剤、カルボン酸エステル系の抑制剤等を添加してもよい。また難燃性の目的を損なわないかぎり、補強性の煙霧質シリカや湿式系の微粉末シリカ等を充填してもよい。更にカーボンブラック、ベンガラ、酸化セリウム、水酸化セリウム、酸化チタン、チタン酸エステル、アルミナ、ベンゾトリアゾール、ベンズイミダゾール、フェノキサジン、N-アリルアニリン、p-アニリノフェ

ノール、*m*-アニリノフェノール、2-フェニルインドール、2-アニリノエタノール等を本発明の目的を損なわない範囲で添加してもよい。

#### 【0027】

本発明の組成物は、上記各成分を常法に準じて混合することにより調製することができるが、必要に応じて2成分又はそれ以上に分割してもよく、例えば、(A)成分の一部及び(C)成分からなる成分と、(A)成分の残部及び(B)、(D)成分からなる成分とに分割することも可能である。

#### 【0028】

本発明の組成物は、常温もしくは用途に応じた温度条件下で硬化させることができ、これにより難燃性が付与されたシリコンゴムやシリコンゲルを与えることができる。

#### 【0029】

本発明によれば、従来困難であった透明性を有するシリコンゴムやシリコンゲルに難燃性を付与することができるものであり、例えば、集積回路保護用材料として多用されているシリコンゲルに難燃性を付与することで、これら電子部品としても信頼性を更に高めることができる。

#### 【0030】

##### 【実施例】

以下、実施例及び比較例を示し、本発明を具体的に説明するが、本発明は下記の実施例に制限されるものではない。なお、下記の例において部及び%はそれぞれ重量部と重量%を示す。

#### 【0031】

##### 〔実施例1〕

分子鎖両末端がジメチルビニルシロキシ基で封鎖され、25℃での粘度が1,000 mPa・sであるジメチルポリシロキサン（環状ジメチルシロキサン3～10量体(D<sub>3</sub>～D<sub>10</sub>)の含有量の合計2,500 ppm)100部に、下記式(3)

## 【化 1】



で示され、常温での粘度が  $120 \text{ mPa} \cdot \text{s}$  であるメチルハイドロジェンポリシロキサン（環状ジメチルシロキサン 3～10 量体（ $\text{D}_3 \sim \text{D}_{10}$ ）の含有量の合計 2,800 ppm）1.7 部（このとき、珪素原子に結合した水素原子の個数とビニル基の個数の比（以下、 $\text{H/Vi}$  と略す）は 0.7 であった。）、白金原子として 1% 含有する塩化白金酸ビニルシロキサン錯体のジメチルポリシロキサン溶液 0.25 部、ベンゾオキサゾール 0.005 部を均一に混合後、 $150^\circ\text{C}/30$  分加熱硬化して、針入度 45 で厚さ 3 mm の透明なシリコンゲルシートを得た。

## 【0032】

## [実施例 2]

実施例 1 のジメチルポリシロキサンの代わりに、低分子シロキサン（環状ジメチルシロキサン 3～10 量体（ $\text{D}_3 \sim \text{D}_{10}$ ）の含有量の合計）が 350 ppm である分子鎖両末端がジメチルビニルシロキシ基で封鎖された  $25^\circ\text{C}$  での粘度が  $1,000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$  であるジメチルポリシロキサンを用い、実施例 1 のメチルハイドロジェンポリシロキサンの代わりに、低分子シロキサン（環状ジメチルシロキサン 3～10 量体（ $\text{D}_3 \sim \text{D}_{10}$ ）の含有量の合計）が 330 ppm であり、前記式（3）で示されるメチルハイドロジェンポリシロキサンを用いた以外はすべて同様にして、針入度 43 で厚さ 3 mm の透明なシリコンゲルシートを得た。

## 【0033】

## [実施例 3]

実施例 1 の組成物を  $60^\circ\text{C}$  で 2 時間加熱して、針入度 50 で厚さ 3 mm の透明なシリコンゲルシートを得た。

## 【0034】

## [実施例 4]

平均的に片末端がジメチルビニルシリル基で封鎖された  $25^\circ\text{C}$  における粘度が

800 mPa・s のジメチルポリシロキサン 100 部に、実施例 1 のメチルハイドロジェンポリシロキサン 0.9 部（このとき H/V i は 1.2 であった。）、白金原子として 1% 含有する塩化白金酸ビニルシロキサン錯体のジメチルポリシロキサン溶液 0.25 部、1,2-ベンズイソキサゾール 0.010 部を均一に混合後、25℃にて 1 日放置して、針入度 53 で厚さ 3 mm の透明なシリコンゲルシートを得た。

### 【0035】

#### [実施例 5]

末端がジメチルビニルシリル基で封鎖され、25℃での粘度が 1,000 mPa・s であるジメチルポリシロキサン 100 部に、下記式 (4)

#### 【化 2】



で表され、25℃での粘度が 30 mPa・s であるメチルハイドロジェンポリシロキサン 5.5 部（このとき、H/V i は 1.5 であった。）、白金原子として 1% 含有する塩化白金酸ビニルシロキサン錯体のジメチルポリシロキサン溶液 0.25 部、1,2-ベンズイソキサゾール 0.010 部、インダゾール 0.005 部を均一に混合後、150℃/30 分加熱して、アスカ C 硬度 10 で厚さ 3 mm の透明なシリコンゴムシートを得た。

### 【0036】

#### [比較例 1]

実施例 1 において、ベンゾオキサゾールを添加しない以外は同様にして、針入度 38 で厚さ 3 mm の透明なシリコンゲルシートを得た。

### 【0037】

#### [比較例 2]

実施例 2 において、ベンゾオキサゾールを添加しない以外は同様にして、針入度 37 で厚さ 3 mm の透明なシリコンゲルシートを得た。

### 【0038】

## 〔比較例 3〕

実施例 1 において、ベンゾオキサゾール 0.005 部の代わりに、ベンゾイミダゾール 0.01 部を用いて均一な混合物とし、これを室温（25℃）にて 1 日間放置したが、硬化物は得られなかった。

## 【0039】

## 〔比較例 4〕

実施例 1 において、ベンゾオキサゾールの代わりに、ベンゾトリアゾールを 0.003 部用い、得られた組成物を 60℃にて 4 時間加熱して、針入度 85 で厚さ 3 mm の透明なシリコンゲルシートを得た。

## 【0040】

以上の 9 種類のシリコン組成物に関して、難燃性の試験を実施した。試験は、得られた厚み 3 mm のシートを 125 mm×13 mm の短冊状に切断し、アンダーライターズ・ラボラトリーズ社（UNDERWRITERS LABORATORIES INC.）によって定められた UL-94V-0, V-1, V-2 垂直燃焼試験に準じて行った。この結果を表 1 に示した。なお、数値は 5 組の試験の平均を示した。

## 【0041】

【表 1】

難燃性 (秒数)	実施例					比較例			
	1	2	3	4	5	1	2	3	4
1 回目	12	8	14	11	5	全焼	全焼	—	120
2 回目	2	1	2	2	1	—	—	—	88

## 【0042】

## 【発明の効果】

本発明の難燃性シリコン組成物は、透明性を有し、しかも優れた硬化性と難燃性を有するゴム状又はゲル状の硬化物を与えることができ、IC やハイブリッド IC 保護等のために好適に用いられる。

【書類名】 要約書

【要約】

【解決手段】 (A) 1分子中に低級アルケニル基を少なくとも1個有するオルガノポリシロキサン、

(B) 1分子中に珪素原子に結合した水素原子を少なくとも2個有するオルガノハイドロジェンポリシロキサン、

(C) 白金又は白金系化合物、

(D) インドリン、1, 2, 3-トリアゾール、1, 2, 4-トリアゾール、イミダゾール、インダゾール、ベンゾオキサゾール、2-ヒドロキシベンツオキサゾール、5-ベンジルオキシインドール、1, 2-ベンズイソキサゾール、2, 1-ベンズイソキサゾール及び1, 3-ベンゾジオキサソールから選ばれる1種又は2種以上の化合物

を含有する難燃性シリコーン組成物。

【効果】 本発明の難燃性シリコーン組成物は、透明性を有し、しかも優れた硬化性と難燃性を有するゴム状又はゲル状の硬化物を与えることができる。

【選択図】 なし

特願 2002-347807

出願人履歴情報

識別番号

[000002060]

1. 変更年月日

1990年 8月22日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都千代田区大手町二丁目6番1号

氏 名

信越化学工業株式会社

2. 変更年月日

2003年 4月11日

[変更理由]

名称変更

住所変更

住 所

東京都千代田区大手町二丁目6番1号

氏 名

信越化学工業株式会社